

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-2549

(P2004-2549A)

(43) 公開日 平成16年1月8日(2004.1.8)

(51) Int. Cl.⁷

C09J 5/03

C09J 9/02

C09J 183/04

C09J 201/10

F I

C09J 5/06

C09J 9/02

C09J 183/04

C09J 201/10

テーマコード (参考)

4J040

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 13 頁)

(21) 出願番号

特願2002-160029 (P2002-160029)

(22) 出願日

平成14年5月31日 (2002.5.31)

(71) 出願人 000002174

積水化学工業株式会社

大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号

(72) 発明者 福井 弘司

大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学

工業株式会社内

(72) 発明者 川端 和裕

滋賀県甲賀郡水口町泉1259 積水化学

工業株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 接着構造体の剥離方法および接着剤

(57) 【要約】

【課題】 対向する被着体が接着剤を介して貼り合わされた接着構造体を、被着体を損傷することなく、容易に剥離し、分別解体することができる接着構造体の剥離方法を提供する。

【解決手段】 対向する二つの被着体が接着剤を用いて接合されてなる接着構造体の剥離方法であって、上記接着剤の硬化物の動的粘弾性スペクトルにおける $\tan \delta$ が0.09以下となるまで上記接着構造体を加熱した後、接着構造体に剥離方向の応力を加えることを特徴とする接着構造体の剥離方法、接着構造体の加熱に高周波誘導加熱装置を用いることを特徴とする上記接着構造体の剥離方法、接着構造体を構成する被着体の少なくとも一方が導電性であることを特徴とする上記接着構造体の剥離方法、および、上記接着構造体の剥離方法に使用されることを特徴とする接着剤、接着剤が導電性フィラーを含有することを特徴とする上記接着剤および接着剤が特定の化合物(A)および特定の化合物(B)からなる光硬化性接着剤であることを特徴とする上記接着剤。

BEST AVAILABLE COPY

(2)

【特許請求の範囲】

【請求項1】

対向する二つの被着体が接着剤を用いて接合されてなる接着構造体の剥離方法であって、上記接着剤の硬化物の動的粘弾性スペクトルにおける $\tan \delta$ が0.09以下となるまで上記接着構造体を加熱した後に、接着構造体に剥離方向の応力を加えることを特徴とする接着構造体の剥離方法。

【請求項2】

接着構造体の加熱に高周波誘導加熱装置を用いることを特徴とする請求項1に記載の接着構造体の剥離方法。

【請求項3】

接着構造体を構成する被着体の少なくとも一方が導電性であることを特徴とする請求項1または請求項2に記載の接着構造体の剥離方法。

【請求項4】

請求項1～請求項3のいずれか1項に記載の接着構造体の剥離方法に使用されることを特徴とする接着剤。

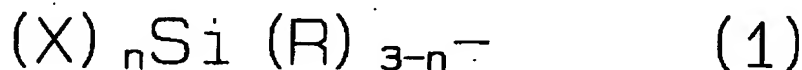
【請求項5】

接着剤が導電性フィラーを含有することを特徴とする請求項4に記載の接着剤。

【請求項6】

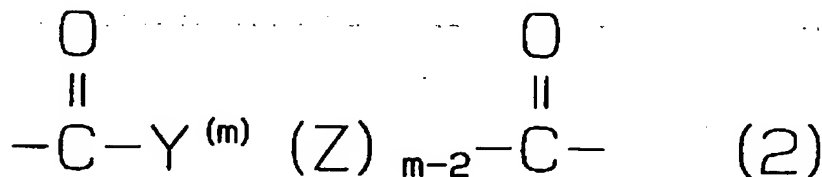
接着剤が下記一般式(1)で表される官能基を有する化合物(A)および下記一般式(2)で表される官能基を有する化合物(B)からなる光硬化性接着剤であることを特徴とする請求項4または請求項5に記載の接着剤。

【化1】



(式中、Xは加水分解性を有する官能基を示し、Rは炭化水素基を示し、nは1～3の整数を示す)

【化2】



(式中、Yは酸素原子、窒素原子、リン原子または炭素原子を示し、Zは炭化水素基またはオキシド基を示し、mは2～5の整数を示す(ただし、オキシド基はmが4または5のときに限る))

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、接着構造体の剥離方法および接着剤に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来より、接着時の作業性に適合させて液状やシート状(フィルム状)などの様々な形態の接着剤が用いられている。これら接着剤を用いた接着においては、簡便で作業性が良好であることのみならず、接着剤を介した接着構造体は一般に面接着である場合が多く、接着構造体に掛かる応力が分散されるため、強力な接着力を得ることが可能である。

【0003】

(3)

しかし、役目が終わった接着構造体を分別解体して廃棄する際には、接着剤そのものの接着力が強い為、接着構造体を分別解体させることが困難であるという問題点がある。例えば、強制的に解体を試みると、分別したい被着体が破損したり、破砕するという問題点がある。また、被着体のどちらか一方に回路部分や機械部分等が存在し、その箇所に故障が生じた場合に、その回路部分や機械部分等が存在する被着体のみを損傷することなく剥離するのは困難であるという問題点もある。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、上記問題点に鑑み、対向する被着体が接着剤を介して貼り合わされた接着構造体を、被着体を損傷することなく、容易に剥離し、分別解体することができる接着構造体の剥離方法および上記接着構造体の剥離方法に使用される接着剤を提供することにある。

【0005】

【課題を解決するための手段】

請求項1に記載の発明による接着構造体の剥離方法は、対向する二つの被着体が接着剤を用いて接合されてなる接着構造体の剥離方法であって、上記接着剤の硬化物の動的粘弾性スペクトルにおける $\tan \delta$ が0.09以下となるまで上記接着構造体を加熱した後に、接着構造体に剥離方向の応力を加えることを特徴とする。

【0006】

請求項2に記載の発明による接着構造体の剥離方法は、上記請求項1に記載の接着構造体の剥離方法において、接着構造体の加熱に高周波誘導加熱装置を用いることを特徴とする。

【0007】

請求項3に記載の発明による接着構造体の剥離方法は、上記請求項1または請求項2に記載の接着構造体の剥離方法において、接着構造体を構成する被着体の少なくとも一方が導電性であることを特徴とする。

【0008】

請求項4に記載の発明による接着剤は、上記請求項1～請求項3のいずれか1項に記載の接着構造体の剥離方法に使用されることを特徴とする。

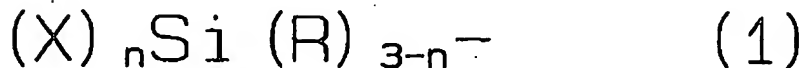
【0009】

請求項5に記載の発明による接着剤は、上記請求項4に記載の接着剤において、接着剤が導電性フィラーを含有することを特徴とする。

【0010】

請求項6に記載の発明による接着剤は、上記請求項4または請求項5に記載の接着剤において、接着剤が下記一般式(1)で表される官能基を有する化合物(A)および下記一般式(2)で表される官能基を有する化合物(B)からなる光硬化性接着剤であることを特徴とする。

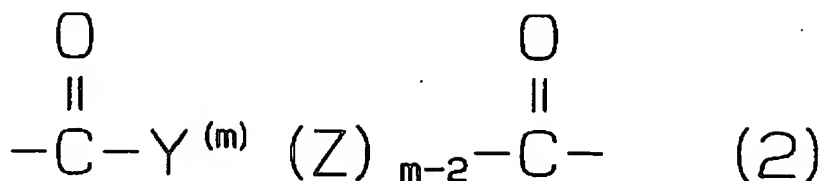
【化3】



(式中、Xは加水分解性を有する官能基を示し、Rは炭化水素基を示し、nは1～3の整数を示す)

【化4】

(4)



{式中、Yは酸素原子、窒素原子、リン原子または炭素原子を示し、Zは炭化水素基またはオキシド基を示し、mは2～5の整数を示す(ただし、オキシド基はmが4または5のときに限る)} }

【0011】

本発明の接着構造体の剥離方法は、対向する二つの被着体が接着剤を用いて接合されてなる接着構造体の剥離方法であって、上記接着剤の硬化物の動的粘弾性スペクトルにおける $\tan \delta$ が0.09以下となるまで上記接着構造体を加熱した後、接着構造体に剥離方向の応力を加えることにより、接着構造体を剥離する方法である。なお、本発明で言う接着剤には粘着剤も包含される。

【0012】

本発明で言う動的粘弾性スペクトルにおける $\tan \delta$ とは、下記式(a)または下記式(b)で定義される値を意味する。

$$\tan \delta = G'' / G' \quad \text{式(a)}$$

(式中、 G' は動的剪断弾性率を示し、 G'' は損失剪断弾性率を示す)

$$\tan \delta = E'' / E' \quad \text{式(b)}$$

(式中、 E' は動的引張り弾性率を示し、 E'' は損失引張り弾性率を示す)

【0013】

接着剤の硬化物の上記 $\tan \delta$ が0.09以下となる前に接着構造体の剥離を試みても、動的粘弾性の弾性項(G' または E')は低くなり、硬化物は柔らかくなるものの、動的粘弾性の損失項(G'' または E'')が剥離力に対して応力分散性を示す程度の水準(レベル)となるため、接着構造体の剥離は困難となる。また、強制的に剥離を試みると、接着構造体を構成する被着体が破壊して、接着構造体の剥離が困難となる場合がある。

【0014】

従って、本発明の接着構造体の剥離方法においては、接着剤の硬化物の上記 $\tan \delta$ が0.09以下となるまで接着構造体を加熱した後、接着構造体を剥離することが必要である。

【0015】

接着構造体を加熱するための加熱装置としては、特に限定されるものではないが、例えば、オープン、IR加熱装置、高周波誘導加熱装置、高周波誘電加熱装置、ホットプレート等の公知の各種加熱装置が挙げられ、被着体の材質や形状、接着構造体の形状や大きさ等を考慮して適宜選択すれば良いが、なかでも、被着体が導電性を有していない場合でも、接着剤の硬化物のみを効果的に加熱することができることから、高周波誘導加熱装置を用いることが好ましい。

【0016】

本発明の接着構造体の剥離方法においては、接着構造体を構成する被着体の少なくとも一方が導電性であることが好ましい。

【0017】

被着体の少なくとも一方が導電性であることにより、接着構造体の加熱を通电によって行う場合の加熱効率が著しく向上して、接着剤の硬化物の前記 $\tan \delta$ を速やかに0.09以下とすることができる。

【0018】

次に、本発明の接着剤は、上記本発明の接着構造体の剥離方法に使用される接着剤である。

(5)

【0019】

本発明の接着構造体の剥離方法において、接着構造体の製作に用いられる接着剤としては、特に限定されるものではないが、例えば、アクリル樹脂系接着剤、エポキシ樹脂系接着剤、ポリエステル樹脂系接着剤、ポリアミド樹脂系接着剤、天然ゴム系接着剤、合成ゴム系接着剤、その他の熱可塑性樹脂系接着剤、その他の熱硬化性樹脂系接着剤等の公知の各種接着剤が挙げられ、いずれの接着剤が用いられても良い。また、これらの接着剤は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0020】

また、上記接着剤の形態は、特に限定されるものではなく、例えば、湿気硬化型接着剤、光硬化型接着剤、熱硬化型接着剤、ホットメルト型接着剤、溶剤型接着剤、エマルジョン型接着剤、シート状（フィルム状）接着剤等の如何なる形態の接着剤であっても良い。

【0021】

本発明の接着剤においては、上記接着剤のなかでも、導電性フィラーを含有する接着剤を用いることが好ましい。

【0022】

上記導電性フィラーを含有する接着剤を用いることにより、接着構造体の加熱を通电によって行う場合の特に接着剤の硬化物に対する加熱効率が著しく向上して、接着剤の硬化物の前記 $\tan \delta$ を速やかに 0.09 以下とすることができる。

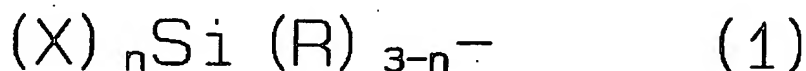
【0023】上記導電性フィラーとしては、特に限定されるものではないが、例えば、金粉、銀粉、銅粉、アルミニウム粉、鉄粉などの金属粉末や、例えばシリカなどの無機粒子や例えばエマルジョン重合法や懸濁重合法等で得られる各種有機高分子粒子等の表面を金、白金、銀、銅、アルミニウム、鉄などの金属やITO、ハンダなどの金属化合物等で被覆した被覆粒子等が挙げられる。これらの導電性フィラーは、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0024】

また、本発明の接着剤においては、上記接着剤のなかでも、下記一般式（1）で表される官能基を有する化合物（A）および下記一般式（2）で表される官能基を有する化合物（B）からなる光硬化性接着剤を用いることが好ましい。光硬化性接着剤を用いることにより、貼り合わされる被着体同士の密着性や接着性を十分に確保することができるとともに、光照射から継続的に光硬化反応が進行し、速やかに次工程へ移行することができる。

【0025】

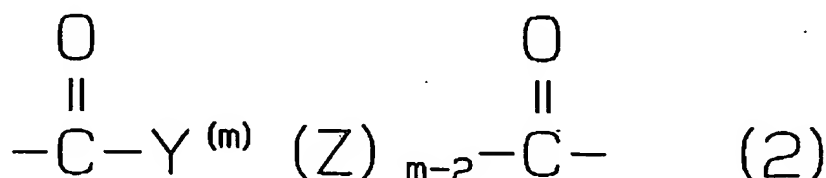
【化5】



（式中、Xは加水分解性を有する官能基を示し、Rは炭化水素基を示し、nは1～3の整数を示す）

【0026】

【化6】



（式中、Yは酸素原子、窒素原子、リン原子または炭素原子を示し、Zは炭化水素基またはオキシド基を示し、mは2～5の整数を示す（ただし、オキシド基はmが4または5の

(6)

ときに限る) }

【0027】

上記一般式(1)で表される官能基を有する化合物(A)とは、珪素原子に加水分解性を有する官能基(X)が1〜3個置換した官能基構造を有する化合物である。

【0028】

一般式(1)中の加水分解性を有する官能基(X)とは、珪素原子と官能基との結合が加水分解性を有する官能基のことであり、その具体例としては、特に限定されるものではないが、例えば、アルコキシ基、オキシム基、アルケニルオキシ基、アセトキシ基等や、これらに塩素、臭素、ヨウ素などのハロゲン基を置換させたもの等が挙げられるが、なかでも、化合物(A)や光硬化性接着剤の貯蔵安定性が優れたものとなることから、アルコキシ基が好適に用いられる。これらの加水分解性を有する官能基(X)は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0029】

上記アルコキシ基としては、特に限定されるものではないが、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、ブトキシ基、tert-ブトキシ基、フェノキシ基、ベンジルオキシ基等が挙げられる。加水分解性を有する官能基(X)がジアルコキシ基またはトリアルコキシ基である場合、アルコキシ基は、同一のものであっても良いし、異なるものであっても良い。

【0030】

一般式(1)中の炭化水素基(R)としては、特に限定されるものではないが、例えば、飽和脂肪族系炭化水素基、不飽和脂肪族系炭化水素基、芳香族系炭化水素基等や、これらにアミノ基、水酸基、エーテル基、エポキシ基、重合性不飽和基、ウレタン基、ウレア基、イミド基、エステル基などの置換基を置換させたもの等が挙げられる。これらの炭化水素基(R)は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0031】

上記化合物(A)は、一般式(1)で表される官能基を1分子中に複数個有する化合物であって良いし、また、一般式(1)で表される異なる種類の官能基を1分子中に有する化合物であって良い。

【0032】

上記化合物(A)の具体例としては、特に限定されるものではないが、例えば、プロピレングリコール、エチレングリコール、ブチレングリコールなどのアルキレングリコールをモノマーユニットとするポリマー、エステル結合を有するポリエステル、アミド結合を有するポリアミド、カーボネート結合を有するポリカーボネート、ポリ(メタ)アクリレート、ポリスチレン、ポリオレフィンなどのポリマーや、これらのコポリマー等に一般式(1)で表される官能基を含有させた化合物が挙げられる。一般式(1)で表される官能基は、上記ポリマーやコポリマーの末端に位置していても良いし、側鎖に位置していても良いし、末端および側鎖に位置していても良い。

【0033】

また、上記化合物(A)の市販品としては、特に限定されるものではないが、例えば、鐘淵化学工業社製の商品名「MSポリマーS-203」、「MSポリマーS-303」、「MSポリマーS-903」、商品名「エピオンEP-103S」、「エピオンEP-303S」、「エピオンEP-505S」、商品名「サイリルSAT-200」、「サイリルMA-403」、「サイリルMA-447」、旭硝子社製の商品名「エクセスターESS-2410」、「エクセスターESS-2420」、「エクセスターESS-3630」チッソ社製のアセトキシ末端ポリジメチルシロキサン(商品名「PS363.5」)、ジメチルアミノ末端ポリジメチルシロキサン(商品名「PS383」)、エトキシ末端ポリジメチルシロキサン(商品名「PS393」)、ステアリロキシ末端ポリジメチルシロキサン(商品名「PS053.5」)、トリエトキシシリル変性ポリ(1,2-ブタジエン)(商品名「PS078.5」)、(N-トリメトキシシリルプロピル)ポリアザミド(商品名「PS075」)、(N-トリメトキシシリルプロピル)ポリエチレンイミン(商

(7)

品名「PS076」)、(N-トリメトキシシリルプロピル)-O-ポリエチレンオキサイドウレタン(商品名「PS077」)等が挙げられる。

【0034】

これらの化合物(A)は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0035】

また、前記一般式(2)で表される官能基を有する化合物(B)とは、酸素原子、窒素原子、リン原子および炭素原子からなる群より選択される原子Yに対して、カルボニル基が2個結合し、原子Yの価数に応じて炭化水素基またはオキシド基Zが適宜結合した官能基を有する化合物である。

【0036】

上記化合物(B)において、一般式(2)で表される官能基は、単一のものであっても良いし、複数個が組み合わされたものであっても良い。

【0037】

また、一般式(2)において、原子Yは、同一のものであっても良いし、異なるものであっても良い。また、mが4または5である場合、炭化水素基またはオキシド基Zは、同一のものであっても良いし、異なるものであっても良い。

【0038】

一般式(2)中の炭化水素基(Z)としては、特に限定されるものではないが、例えば、飽和脂肪族系炭化水素基、不飽和脂肪族系炭化水素基、芳香族系炭化水素基等や、これらにアミノ基、水酸基、エーテル基、エポキシ基、重合性不飽和基、ウレタン基、ウレア基、イミド基、エステル基などの置換基を置換させたもの等が挙げられる。これらの炭化水素基(Z)は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0039】

上記化合物(B)としては、特に限定されるものではないが、例えば、有機基によって環状構造にした化合物、環状構造であって同じ環状鎖の中に複数個の同種もしくは異種の一般式(2)で表される官能基を有する化合物、複数個の同種もしくは異種の環状化合物を適宜の有機基で結合した化合物、複数個の同種もしくは異種の環状化合物をユニットとして1個以上有する双環化合物等が挙げられる。これらの化合物(B)は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0040】

一般式(2)において原子Yが酸素原子である場合の化合物(B)の具体例としては、特に限定されるものではないが、例えば、酢酸無水物、プロピオン酸無水物、ブチル酸無水物、イソブチル酸無水物、バレリク酸無水物、2-メチルブチル酸無水物、トリメチル酢酸無水物、ヘキサン酸無水物、ヘプタン酸無水物、デカン酸無水物、ラウリル酸無水物、ミリスチル酸無水物、パルミチン酸無水物、ステアリル酸無水物、ドコサン酸無水物、クロトン酸無水物、(メタ)アクリル酸無水物、オレイン酸無水物、リノレイン酸無水物、クロロ酢酸無水物、ヨード酢酸無水物、ジクロロ酢酸無水物、トリフルオロ酢酸無水物、クロロジフルオロ酢酸無水物、トリクロロ酢酸無水物、ペンタフルオロプロピオン酸無水物、ヘプタフルオロブチル酸無水物、コハク酸無水物、メチルコハク酸無水物、2,2-ジメチルコハク酸無水物、イソブチルコハク酸無水物、1,2-シクロヘキサンジカルボン酸無水物、ヘキサヒドロ-4-メチルフタル酸無水物、イタコン酸無水物、1,2,3,6-テトラヒドロフタル酸無水物、3,4,5,6-テトラヒドロフタル酸無水物、マレイン酸無水物、2-メチルマレイン酸無水物、2,3-ジメチルマレイン酸無水物、1-シクロペンテン-1,2-ジカルボン酸無水物、グルタル酸無水物、1-ナフチル酢酸無水物、安息香酸無水物、フェニルコハク酸無水物、フェニルマレイン酸無水物、2,3-ジフェニルマレイン酸無水物、フタル酸無水物、4-メチルフタル酸無水物、3,3',4,4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸ジ無水物、4,4'-(ヘキサフルオロプロピリデン)ジフタル酸無水物、1,2,4,5-ベンゼンテトラカルボン酸無水物、1,8-ナフタレンジカルボン酸無水物、1,4,5,8-ナフタレンテトラカルボン酸無水物などの酸無水物や、マレイン酸無水物と例えば(メタ)アクリレート、スチレン

(8)

、ビニルエーテルなどのラジカル重合性二重結合を有する化合物との共重合体等が挙げられる。

【0041】

また、一般式(2)において原子Yが酸素原子である場合の化合物(B)の市販品としては、特に限定されるものではないが、例えば、旭電化工業社製の商品名「アデカハードナーEH-700」、「アデカハードナーEH-703」、「アデカハードナーEH-705A」、新日本理化社製の商品名「リカシッドTH」、「リカシッドHT-1」、「リカシッドHH」、「リカシッドMH-700」、「リカシッドMH-700H」、「リカシッドMH」、「リカシッドSH」、「リカレジンTMEG」、日立化成社製の商品名「HN-5000」、「HN-2000」、油化シェルエポキシ社製の商品名「エピキュア134A」、「エピキュアYH306」、「エピキュアYH307」、「エピキュアYH308H」、住友化学工業社製の商品名「スミキュア-MS」等が挙げられる。

【0042】

一般式(2)において原子Yが酸素原子である場合のこれらの化合物(B)は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0043】

一般式(2)において原子Yが窒素原子である場合の化合物(B)の具体例としては、特に限定されるものではないが、例えば、コハク酸イミド、N-メチルコハク酸イミド、 α , α -ジメチル- β -メチルコハク酸イミド、 α -メチル- α -プロピルコハク酸イミド、マレイミド、N-メチルマレイミド、N-エチルマレイミド、N-プロピルマレイミド、N-tert-ブチルマレイミド、N-ラウリルマレイミド、N-シクロヘキシルマレイミド、N-フェニルマレイミド、N-(2-クロロフェニル)マレイミド、N-ベンジルマレイミド、N-(1-ピレニル)マレイミド、3-メチル-N-フェニルマレイミド、N, N'-1, 2-フェニレンジマレイミド、N, N'-1, 3-フェニレンジマレイミド、N, N'-1, 4-フェニレンジマレイミド、N, N'-(4-メチル-1, 3-フェニレン)ビスマレイミド、1, 1'-(メチレンジ-1, 4-フェニレン)ビスマレイミド、フタルイミド、N-メチルフタルイミド、N-エチルフタルイミド、N-プロピルフタルイミド、N-フェニルフタルイミド、N-ベンジルフタルイミド、ピロメリット酸ジイミド等や、N-アルキルマレイミドと例えば(メタ)アクリレート、スチレン、ビニルエーテルなどのラジカル重合性二重結合を有する化合物との共重合体等が挙げられる。一般式(2)において原子Yが窒素原子である場合のこれらの化合物(B)は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0044】

一般式(2)において原子Yがリン原子である場合の化合物(B)の具体例としては、特に限定されるものではないが、例えば、ビス(2, 6-ジメトキシベンゾイル)-2, 4, 4-トリメチル-ペンチルホスフィンオキシド、ビス(2, 4, 6-トリメチルベンゾイル)フェニルホスフィンオキシドなどのアシルホスフィンオキシド等が挙げられる。一般式(2)において原子Yがリン原子である場合のこれらの化合物(B)は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0045】

一般式(2)において原子Yが炭素原子である場合の化合物(B)の具体例としては、特に限定されるものではないが、例えば、2, 4-ペンタンジオン、3-メチル-2, 4-ペンタンジオン、3-エチル-2, 4-ペンタンジオン、3-クロロ-2, 4-ペンタンジオン、1, 1, 1-トリフルオロ-2, 4-ペンタンジオン、1, 1, 1, 5, 5, 5-ヘキサフルオロ-2, 4-ペンタンジオン、2, 2, 6, 6-テトラメチル-3, 5-ヘプタンジオン、1-ベンゾイルアセトン、ジベンゾイルメタンなどのジケトン類；ジメチルマロネート、ジエチルマロネート、ジメチルメチルマロネート、テトラエチル-1, 1, 2, 2-エタントトラカルボン酸などのポリカルボン酸エステル類；メチルアセチルアセトナート、エチルアセチルアセトナート、メチルプロピオニルアセテートなどの α -カルボニル酢酸エステル類等が挙げられる。一般式(2)において原子Yが炭素原子であ

(9)

る場合のこれらの化合物(B)は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0046】

本発明で好ましく用いられる光硬化性接着剤においては、前記一般式(2)で表される官能基を有する上記化合物(B)のなかでも、前記化合物(A)に対する溶解性に優れることから、カルボン酸無水物、カルボン酸イミドおよびアシルホスフィンオキサイドが好適に用いられる。上記カルボン酸無水物、カルボン酸イミドおよびアシルホスフィンオキサイドは、それぞれ単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0047】

上記光硬化性接着剤中における上記化合物(B)の含有量は、特に限定されるものではないが、前記化合物(A)100重量部に対して、上記化合物(B)0.01~30重量部であることが好ましく、より好ましくは1~20重量部である。

【0048】

化合物(B)の含有量が化合物(A)100重量部に対して0.01重量部未満であると、光硬化性接着剤の光硬化性が不十分となることがあり、逆に化合物(B)の含有量が化合物(A)100重量部に対して30重量部を超えると、光硬化性接着剤の光透過性が低下して、光照射面の表面のみに光硬化反応が起こり、深部硬化性が不十分となることがある。

【0049】

上記光硬化性接着剤には、本発明の課題達成を阻害しない範囲で必要に応じて、例えば、前記化合物(A)の光硬化反応を促進するための有機金属化合物、感光性や深部硬化性を向上させるための増感剤、増粘剤、チキソトロップ剤、物性調整剤、増量剤、可塑剤、タレ防止剤、酸化防止剤(老化防止剤)、熱安定剤、光安定剤、紫外線吸収剤、着色剤、香料、溶剤等の各種添加剤の1種類もしくは2種類以上が添加されていても良い。

【0050】

有機金属化合物としては、特に限定されるものではないが、例えば、ゲルマニウム、錫、鉛、硼素、アルミニウム、ガリウム、インジウム、チタニウム、ジルコニウムなどの金属元素と有機基を置換してなる有機金属化合物等が挙げられる。

【0051】

有機金属化合物の具体例としては、特に限定されるものではないが、例えば、ジブチル錫ジラウレート、ジブチル錫オキサイド、ジブチル錫ジアセテート、ジブチル錫フタレート、ビス(ジブチル錫ラウリン酸)オキサイド、ジブチル錫ビスアセチルアセトナート、ジブチル錫ビス(モノエステルマレート)、オクチル酸錫、ジブチル錫オクトエート、ジオクチル錫オキサイドなどの錫化合物や、テトラ-*n*-ブトキシチタネート、テトライソプロポキシチタネートなどのチタニウム化合物等が挙げられる。これらの有機金属化合物は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0052】

光硬化性接着剤中における有機金属化合物の含有量は、特に限定されるものではないが、前記化合物(A)100重量部に対して、有機金属化合物0.01~10重量部であることが好ましく、より好ましくは0.1~8重量部である。

【0053】

有機金属化合物の含有量が化合物(A)100重量部に対して0.01重量部未満であると、光照射後の化合物(A)の光硬化反応が十分に促進されないことがあり、逆に有機金属化合物の含有量が化合物(A)100重量部に対して10重量部を超えると、光照射後の化合物(A)の光硬化反応は十分に促進されるものの、硬化物への好ましくない影響が現れることがある。

【0054】

増感剤としては、特に限定されるものではないが、例えば、4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル(2-ヒドロキシ-2-プロピル)ケトン、 α -ヒドロキシ- α , α' -ジメチルアセトフェノン、メトキシアセトフェノン、2,2-ジメトキシ-2-フェニルア

(10)

セトフェノンなどのアセトフェノン誘導体化合物；ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインプロピルエーテルなどのベンゾインエーテル系化合物；ベンジルジメチルケタールなどのケタール誘導体化合物；ハロゲン化ケトン；アシルホスフィンオキシド；アシルホスフォナート；2-メチル-1-[4-(メチルチオ)フェニル]-2-モルホリノプロパン-1-オン、2-ベンジル-2-N,N-ジメチルアミノ-1-(4-モルホリノフェニル)-1-ブタノン、ビス(2,4,6-トリメチルベンゾイル)フェニルホスフィンオキシド、ビス(2,6-ジメトキシベンゾイル)-2,4,4-トリメチルペンチルホスフィンオキシド、ビス(η 5-シクロペンタジエニル)ビス(ペンタフルオロフェニル)チタニウム、ビス(η 5-シクロペンタジエニル)ビス[2,6-ジフルオロ-3-(1H-ピリ-1-イル)フェニル]チタニウム、アントラセン、ペリレン、コロネン、テトラセン、ベンズアントラセン、フェノチアジン、フラビン、アクリジン、ケトクマリン、チオキサントン誘導体、ベンゾフェノン、アセトフェノン、2-クロロチオキサントン、2,4-ジメチルチオキサントン、2,4-ジエチルチオキサントン、2,4-ジイソプロピルチオキサントン、イソプロピルチオキサントン等が挙げられる。これらの増感剤は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0055】

増粘剤は、前記化合物(A)との相溶性の良い高分子化合物から選ばれることが好ましく、使用される化合物(A)の種類によって適宜選択されれば良い。増粘剤としては、特に限定されるものではないが、例えば、(メタ)アクリル系高分子、ポリビニルアルコール誘導体、ポリ酢酸ビニル、ポリスチレン誘導体、ポリエステル類、ポリエーテル類、ポリオレフィン類、ポリアルキレンオキサイド類、ポリウレタン類、ポリアミド類、天然ゴム、ポリブタジエン、ポリイソプレン、ポリイソブテン、NBR、SBS、SIS、SEBS、水添NBR、水添SBS、水添SIS、水添SEBS等や、これらの共重合体や官能基変性体等が挙げられる。これらの増粘剤は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0056】

チキソトロップ剤は、前記化合物(A)に親和性の高い表面を有する物質から選ばれることが好ましく、使用される化合物(A)の種類によって適宜選択されれば良い。チキソトロップ剤としては、特に限定されるものではないが、例えば、コロイダルシリカ、ポリビニルピロリドン、疎水化炭酸カルシウム、ガラスパール、ガラスビーズ等が挙げられる。これらのチキソトロップ剤は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0057】

物性調整剤としては、特に限定されるものではないが、例えば、ビニルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、テトラメトキシシラン、テトラエトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、ジフェニルジメトキシシラン、3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、3-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-(2-アミノエチル)-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-(2-アミノエチル)-3-アミノプロピルトリエトキシシラン、N,N'-ビス-[3-(トリメトキシシリル)プロピル]エチレンジアミン、N,N'-ビス-[3-(トリエトキシシリル)プロピル]エチレンジアミン、N,N'-ビス-[3-(トリメトキシシリル)プロピル]ヘキサエチレンジアミンなどのシランカップリング剤や、チタンカップリング剤、アルミニウムカップリング剤等が挙げられる。これらの物性調整剤は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0058】

増量剤としては、光硬化性接着剤にチキソトロピー性を付与しないものが好ましく、特に限定されるものではないが、例えば、タルク、クレー、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、無水珪素、含水珪素、珪酸カルシウム、二酸化チタン、カーボンブラック等が挙げら

(11)

れる。これらの増量剤は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0059】

可塑剤としては、特に限定されるものではないが、例えば、リン酸トリブチル、リン酸トリクレジルなどのリン酸エステル類；フタル酸ジオクチルなどのフタル酸エステル類；グリセリンモノオレイル酸エステルなどの脂肪酸－塩基酸エステル類；アジピン酸ジオクチルなどの脂肪酸二塩基酸エステル類；ポリプロピレングリコール類等が挙げられる。これらの可塑剤は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0060】

光硬化性接着剤に光を照射する際に利用できる光源は、光源が発する光により光硬化性接着剤が光活性を示し、前記化合物（A）の光硬化反応により硬化物が生成する光源であれば如何なる光源であっても良く、特に限定されるものではない。

【0061】

上記光源の具体例としては、特に限定されるものではないが、例えば、低圧水銀灯、中圧水銀灯、高圧水銀灯、超高圧水銀灯、エキシマレーザー、ケミカルランプ、ブラックライトランプ、マイクロウェーブ励起水銀灯、メタルハライドランプ、ナトリウムランプ、ハロゲンランプ、キセノンランプ、蛍光灯、太陽光、電子線照射装置等が挙げられる。これらの光源は、単独で用いられても良いし、2種類以上が組み合わせられて用いられても良い。

【0062】

光硬化性接着剤に対する複数の光源による光照射手順は、特に限定されるものではなく、同時照射であっても良いし、時間差をおいての逐次照射であっても良いし、同時照射と逐次照射との組み合わせであっても良い。また、上記光照射に際しては、例えばフィルター等を用いて不要な波長成分を低減もしくは除去しても良い。

【0063】

【発明の実施の形態】

本発明をさらに詳しく説明するため以下に実施例を挙げるが、本発明は以下の実施例のみに限定されるものではない。

【0064】

【接着剤の調製】

5リットルのプラネタリーミキサー中で、遮光下、60℃で、アルコキシシリル変性ポリプロピレングリコール（商品名「MSポリマーS-303」、鐘淵化学工業社製）100g、無水マレイン酸5g、アシルホスフィンオキサイド（商品名「Ig-819」、チバスペシャルティケミカルズ社製）1gおよびシリカ（商品名「シペライトM-6000」、S. C. R. SIBEL社製）100gを均一になるまで攪拌混合し、減圧脱泡して、光硬化性接着剤を調製した。

【0065】

（実施例）

アルミ板（300mm×200mm×3mm）に上記で得られた光硬化性接着剤を塗膜厚みが1.0mmとなるように塗布した。次いで、高圧水銀灯を用いて、上記光硬化性接着剤の塗布面に照射量500mJ/cm²（365nm）で紫外線を照射し、その上にガラス板（300mm×200mm×8mm）を貼り合わせた。その後、室温で7日間養生して、光硬化性接着剤を硬化させ、接着構造体を製作した。

【0066】

上記で得られた接着構造体をオープンを用いて200℃まで加熱した後、接着構造体に剥離方向の応力を加えたところ、被着体を損傷することなく、1分間以内に容易に剥離することができた。

【0067】

上記光硬化性接着剤の硬化物の動的粘弾性スペクトルを以下の方法で測定し、tanδを求めたところ、200℃でのtanδは0.084であった。

【動的粘弾性スペクトルの測定方法】

(12)

光硬化性接着剤をポリエチレンシート上に塗膜厚みが0.5mm以上となるように塗布し、その塗膜に高圧水銀灯を用いて照射量 500 mJ/cm^2 (365nm)で紫外線を照射し、光硬化反応を開始させた。その後、室温で7日間養生して、光硬化性接着剤を硬化させた。動的粘弾性測定装置を用いて、上記で得られた光硬化性接着剤の硬化物の動的粘弾性スペクトルを測定し、 $\tan \delta$ を求めた。なお、測定周波数は10Hzで行い、また、歪みは線形領域を超えない範囲で加えた。

【0068】

(比較例)

実施例で製作した接着構造体をオーブンを用いて100℃まで加熱した後、接着構造体に剥離方向の応力を加えたが、剥離することは困難であった。また、剥離作業を20分間継続したところ、接着構造体を解体することはできたものの、アルミ板は曲がり、ガラス板は割れながら剥離した。なお、上記光硬化性接着剤の硬化物の動的粘弾性スペクトルを実施例の場合と同様にして測定し、 $\tan \delta$ を求めたところ、100℃での $\tan \delta$ は0.109であった。

【0069】

【発明の効果】

以上述べたように、本発明の接着構造体の剥離方法によれば、対向する被着体が接着剤を介して貼り合わされた接着構造体を、被着体を損傷することなく、容易に剥離し、分別解体することができる。

フロントページの続き

F ターム(参考) 4J040 CA011 CA012 CA031 CA032 DA001 DA002 DB031 DB032 DF041 DF042
DF051 DF052 EC001 EC002 ED001 ED002 EE021 EE022 EG001 EG002
EL021 EL022 GA12 GA31 HA066 HA076 HA306 HB20 HB31 HB32
HB47 HC22 HD27 JB02 JB08 JB10 KA03 KA07 KA14 KA32
PA30 PA31 PA33 PA42

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.